

이산화탄소 포획을 위한 serpentine의 열처리와 물리화학적 특성 변화 연구

최원경*, 조태환*[†]
*단국대학교 공업화학과

Physicochemical Study of Thermal Treated Serpentine for Carbon Dioxide Sequestration

WEON-KYUNG CHOI*, TAE-HWAN CHO*[†]

*Department of Industrial Chemistry, Dankook University,
29 Anseo-dong Cheonan-si Chungnam 330-714, Korea

ABSTRACT

Silicate mineral serpentine with magnesium and calcium was selected as a mineral carbonation mediators for carbon dioxide storage. Serpentine has various metallic elements as an oxides form of magnesium, iron, calcium, aluminium etc. Magnesium and calcium could be carbonation salt preferentially than other metal component within serpentine. Systemic thermochemical treatment for serpentine could change physicochemical properties like a surface area and pore dimensions. Due to the rapid chemical reaction rate depended on dimensional values, carbonation formation could determined by surface property change of thermochemical treated serpentine.

KEY WORDS : serpentine(사문석), BET surface area(BET 표면적), pore volume(기공체적), CO₂ storage(CO₂ 저장), thermochemical treatment(열화학 처리)

1. 서 론

현대 공업사회의 지속적인 팽창과 도시화의 확대는 화석연료 사용을 증가시켰으며 인류는 화석연료의 연소로부터 생활에 필요한 대부분의 에너지를 얻어 사용하고 있다. 석유, 천연가스, 석탄을 대표로 하는 화석연료 연소 부산물인 이산화탄소

(CO₂)의 농도가 대기 중에 급격히 증가하고 있다. 연소 부산물인 이산화탄소는 대기 중에 확산되면서 자연적으로 분해되지 않고 지속적으로 대기층 CO₂의 농도를 증가시켜 지표에 전달되는 태양에너지를 차단하는 차단막 역할을 하게 된다. 태양에너지로부터 지표면의 복사열을 우주로 배출하는 순환을 차단함으로써 지표부근의 기온을 높이는 온실가스로서 작용하기 때문에 지구온난화와 기후의 변화를 일으키는 주요 원인 물질로 밝혀졌다^{1,2)}.

[†]Corresponding author : thcho@dankook.ac.kr

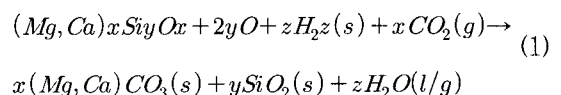
CO₂는 60% 이상의 온실효과를 유발하는 기체로서 에너지의 대량소비가 지속되는 현대 인류의 생존 활동에 따라 생산되고 있기 때문에 온실가스 저감을 위한 주요 목적물이 되고 있다. CO₂ 발생의 주요 원인은 전력을 얻기 위한 화력발전소, 각종 공업시설의 에너지공급 시스템, 수송용 자동차 등에서 발생하는 배기가스이며 석유, 석탄, 천연가스가 발생원천으로서 현대 인류에 필요한 에너지를 얻기 위한 기초적인 활동에 수반되어 CO₂가 생산되고 있는 것이다.

CO₂ 발생감소를 위해서 다양한 노력이 경주되고 있으며 그 방법은 에너지 절약, 배출된 이산화탄소 분리, 이산화탄소 저장 등의 연구로 대별되어 전 세계적 범위에서 여러 연구자들에 의해 활발히 진행되고 있다. 지금까지 소개된 저장법은 수심 3 km 깊이의 해수에 이산화탄소를 투입하는 해저저장, 폐가스전이나 폐유전에 이산화탄소를 주입하는 지중저장, 지하암반 및 대수층에 이산화탄소를 주입하는 대수층저장이 가능성 있는 저장법으로 거론되고 있다³⁻⁶⁾. 가장 많은 양의 이산화탄소 저장용량을 가진 해저저장은 해수의 pH에 영향을 주어 해양생물의 생태계를 위협할 수 있으며, 저장 후 많은 양의 이산화탄소가 해수의 용승작용으로 인해 대기 중에 다시 방출될 것으로 예상된다. 폐가스전 및 폐유전 사용방식은 이산화탄소를 지하에 저장하는 동시에 이로 인한 압력증가로 천연가스 및 원유 생산을 유도하는 채가스공정(EGR) 및 채유촉진공정(EOR)이 있다. 이 방법은 이미 시행되어 어느 정도 온실가스 저장기능을 하고 있으나 국내 지질 여건엔 부적절한 방식이다^{7,8)}. 지하 대수층저장은 지하저장소에서의 누출로 인해 과도한 이산화탄소가 지하수를 오염시킬 수 있다. 이들 저장방식은 이산화탄소 저장장소와 저장방식에 제한을 받는 한시적인 저장법에 불과하다.

상기의 CO₂ 저장법이 국내의 여건과 불안정성, 환경적 요소들에 의해 보다 안정하고 가능성 있는 방법으로 CO₂를 고형화 하는 화학적 저장법이 관심을 받고 있다. 금속성분과 탄산염으로 CO₂를 변환시키는 화학적 처리기술은 저장법 중에 가장 안

정적인 방법으로, 대체에너지 개발과 경쟁력 있는 비용으로 대부분의 국가에서 사용가능하고, 충분한 저장용량으로 다음 세대에도 부담이 되지 않는 영구적 저장 방법으로 밝혀졌다. 탄산염광물화는 CO₂와 알칼리토금속의 규산염을 발열 반응시켜 열역학적으로 안정한 탄산염으로 전환시키는 반응이다^{9,10)}. 탄산염화 반응은 자연계에서 실제로 발생하고 있는 탄소순환과정의 일부로, 마그네슘탄산염이나 칼슘탄산염의 형태로 풍부한 매장량을 갖고 있다. 그러나 자연계에서의 탄산염 반응은 매우 느리게 진행되므로 인류활동으로 발생하는 CO₂를 처리하기엔 역부족이다. 반응원료인 알칼리토금속은 지구 지표면에 풍부하게 존재하며, 특히 탄산염 형성에 필요한 기본성분인 산화마그네슘 함량이 많은 수철석, 활석 등 규산염 광물에 관심이 집중되고 있다^{11,12)}. 국내 여건 상 적용이 불가능한 해저저장 및 지하저장법의 단점을 완전히 보완한 이산화탄소 탄산염광물화 반응을 연구해야 한다. 대기 중 재방출을 영구적으로 안전하게 차단할 수 있는 저장기술을 개발하는 것은 지구온난화와 기후 이변 등의 피해를 줄이고 생태계의 보전을 위해 연구개발 되어야 할 분야이다. 광물에 포함된 마그네슘산화물(MgO)과 칼슘산화물(CaO)의 함량이 높으면 탄산염광물화 원료광물로서 가능성이 충분한 것이다.

마그네슘과 칼슘은 주로 마그네슘규산염과 칼슘규산염의 형태로 존재한다. 마그네슘규산염 천연광물로서 탄산염광물화를 위해 복잡한 정제 공정이나 별도의 선광공정 등을 필요로 하지 않기 때문에 경제적인 측면에서의 가능성도 높게 평가할 수 있다. 마그네슘과 칼슘을 포함하는 광물과 이산화탄소의 탄산염광물화 반응은 다음 식 (1)과 같다.



이들 반응 역시 발열반응이나, 순수 산화물의

탄산염반응 보다는 낮은 발열량을 보인다.

본 연구는 규산염광물인 사문석을 열화학처리 후 사문석의 물리화학적 특성의 변화에 따른 광물 원료와 기체 CO₂의 반응성을 평가한다. CO₂의 안정적인 저장방법인 탄산염화 반응이 효과적으로 실시되기 위해서 기체상 CO₂와 고체상 광물의 반응속도, 반응면적 등을 고찰하고 탄산염화 원료의 적절한 전처리로서 열화학처리에 대한 평가를 분광학적, 결정학적 측정과 더불어 실시하였다^{13,14}.

2. 실험방법

온실가스의 주요 원인으로 생각되는 이산화탄소 처리 방법의 후보로 주목받는 광물화고정을 위해 본 연구에서는 국산 사문석(蛇紋石, Serpentine, Mg₃Si₂O₅(OH)₄)을 사용하였다. 원료광물은 1차 분쇄 Attrition mill(대화테크)를 실시하고, 입도의 균일화를 위해 Labo, Planetry Potmill(ITOH, LA-PO.4)을 이용한 기계적 분쇄법으로 건식 2차 분쇄를 하였다. 비표면적의 변화에 따른 사문석의 탄산염으로 효과적인 전환을 조사하기 위해 고온 열화학처리 전후의 분말 입자에 대한 변화를 조사하였다.

이 광물을 분쇄한 시료는 자동 sieve shaker(CISA)를 이용하여 53 μm 이하의 사이즈를 선택하고, 고온 전처리실험과 각종 분석에 사용하였다. 유도결합 플라즈마 질량분석(ICPMS)을 이용하여 원광활석의 성분 및 함량을 조사하였다.

원료광물의 고온 전처리공정은 2차 분쇄한 사문석을 10°C/min의 승온단계, 설정온도에서의 90 min 열화학처리단계, 자연냉각단계의 세 단계로 구분하여 알루미늄아 도가니에 넣어 별도의 기체 분위기를 설정하지 않고 Murffle furnace에서 실시하였다. 강열감량은 열화학처리 후 시료의 질량변화를 비교하여 평가하였으며 100°C 온도 간격으로 200°C~1100°C 하소온도 범위에서 실시하였다. 대기 중의 수분의 흡착을 방지하기 위해서 열화학처리 전의 시료의 질량은 120°C에서 90분 간 진공 건조한 후 칭량하였다. 열화학처리를 마친 시료 평

가의 첫 단계로서 강열감량을 조사하였으며, 고온 전처리한 사문석의 질량변화 측정은 대기 중 수분의 영향을 막기 위해 황산 데시케이터에서 2시간 방치냉각 후 칭량하였다

전처리 전후의 시료들의 열적 특성을 조사하기 위해서 TGA(TA Instrument, SDT-2960 V3.0F)을 이용하였다. 측정조건은 승온속도 10°C/min으로 1100°C까지 측정하였으며, 강열감량에 수반되는 질량변화와 비교하기 위하여 비활성 가스를 주입하지 않았다. 고온 전처리 전후 사문석에 포함된 hydroxyl기(-OH)의 제거는 FT-IR 분광기(Bio-Rad. FTS 135)를 이용하여 분광학적 조사를 하였다. 시료들의 산화안정성 및 산화상태를 조사하기 위해서 Mg Ka(hv=1253.6 eV, 120 W) 단색화 장치를 사용한 X-선 광전자 분광법(X-ray Photoelectron Spectroscopy)을 실시했다.

분말 시료의 열화학처리 전후의 비표면적과 기공에 대한 특성 조사는 기체질소를 흡착제로 사용하는 비표면적 및 기공분석 장치(Micromeritics, ASAP 2405)를 이용하여 실시하였다. 약 0.25 g의 시료를 실온에서 4.5 torr까지 탈기 후 측정을 실시하였다. 비표면적은 BET 곡선의 직선부분(P/P₀=0.2)으로부터 결정하였고 기공의 크기와 분포는 질소기체의 탈착선으로부터 계산하였다. 사문석의 고온 전처리 연구에 사용된 시료들의 처리 전후의 결정학적 구조를 조사하기 위해 X-ray Diffractometer(Rikaku Co.)를 사용하였다. 측정조건은 40 kV tube voltage와 30 mA tube current에서 Cu-Kα선(λ=1.542 Å)을 사용하였다.

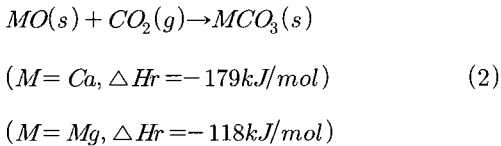
3. 결과 및 고찰

사문석 구성성분 조사의 전처리는 기계적 분쇄법으로 분쇄한 53 μm 이하 사이즈 분말들에 대해 화학적 전처리를 실시하였고 불순물 제거와 이온화 후 유도결합 플라즈마 질량분석(ICPMA)법으로 성분원소를 조사하였다. 이들의 결과를 바탕으로 사문석을 구성하는 성분을 결정하여 Table 1

Table 1 Contents of oxides and volatile substance for serpentine ore

Oxides	Contents / %
Silicon oxide / SiO ₂	40.10
Magnesium oxide / MgO	32.13
Iron oxide / Fe ₂ O ₃	9.52
Calcium oxide / CaO	3.61
Aluminium oxide / Al ₂ O ₃	1.90
Volatile substance / H ₂ O	12.74

에 나타내었다. 이 결과에서 알 수 있듯이 사문석을 구성하는 산화물로는 40.10%의 SiO₂, 32.13%의 MgO, 9.52%의 Fe₂O₃, 3.61%의 CaO, 1.90%의 Al₂O₃, 그리고 휘발성 성분으로 구성된 것이 확인되었다. 사문석에 포함된 마그네슘과 칼슘의 높은 구성 비율은 광물의 구성성분 측면에서 아래의 식과 같이 이산화탄소의 탄산염화에 적당한 성분으로 사문석이 적당한 탄산염광물화의 후보 물질이 될 수 있다는 것을 설명한다¹⁵⁾. 탄산염의 생성은 에너지 준위가 가장 낮은 탄소 화합물형태를 생성하는 강렬한 발열반응이다. 마그네슘 산화물과 칼슘 산화물의 탄산염화 반응으로 다음 반응식 (2)에서 설명된다.



사문석 분말의 열화학처리 전후의 SEM사진을 Fig. 1에 나타내었다. 열화학처리 전(a)의 사진과 1100°C 열화학처리 후(b)의 사진을 비교해 볼 때 입자의 결합이나 분열 등 외관상의 변화는 나타나지 않고 있다. 열화학처리 과정 중 광물을 구성하는 금속성분의 충분한 용해나 휘발성 성분의 폭발적인 기화가 없기 때문에 분말시료 간에 용해와 상호확산에 의한 입자의 결합이나 기체 발생에 따

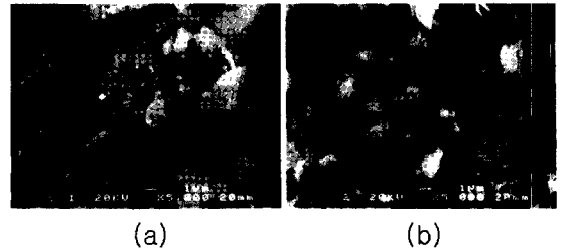


Fig. 1 SEM images of as-milled(a) and as-calcined(b) serpentine powders

른 입자의 균열을 일으키지는 않는 열화학처리가 이루어진 것으로 판단된다.

사문석의 열화학 반응 특성을 조사하기 위해 미처리 사문석분말을 200°C에서 1100°C까지 100°C 간격으로 열화학처리를 실시하였다. 열화학처리 후 나타난 사문석 시료의 질량변화를 막대그래프로 나타내었고 상온에서 1100°C까지 온도 범위에서 열질량분석(TGA) 결과를 곡선 그래프로 표시하여 Fig. 2에 두 결과를 겹쳐서 나타내었다. 사문석에 열이 가해지면서 나타나는 두 질량 변화의 결과가 거의 동일한 경향에 질량 감소폭도 거의 동일한 양적 변화를 보이는 것으로 보아 열화학처리 과정 중 사문석에서 일어나는 열화학적 반응은 동일한 것으로 알 수 있다. TGA 결과에 나타나는 초기 질량 감소는 사문석의 표면에 흡착된 수분을 비롯한 휘발성분들의 탈착에 의한 것으로 판단된다. 이후 500°C까지는 큰 질량 감소가 나타나지 않는 완만한 질량변화가 보이므로 이 온도 범위에서 사문석의 열화학 반응이 거의 없는 것을 알 수 있다. 500°C~700°C사이에서 가장 급격한 질량감소(약 13%)가 나타나는 것은 이 온도 범위에서 질량감소의 원인이 되는 열화학적 반응이 진행되는 것을 시사한다. 900°C 이상의 온도에서 질량 감소가 더 이상 진행되지 않고 동일한 질량을 유지하는 것으로 나타났으므로 900°C~1100°C 온도 범위에서는 사문석에서 열화학 반응이 일어나지 않는 것을 알 수 있다. 이와 같이 3단계로 나타나는 열화학적 질량변화의 원인은 사문석(Mg₃Si₂O₅(OH)₄)의 분자식으로부터 그 질량감소 반응을 추론할 수 있

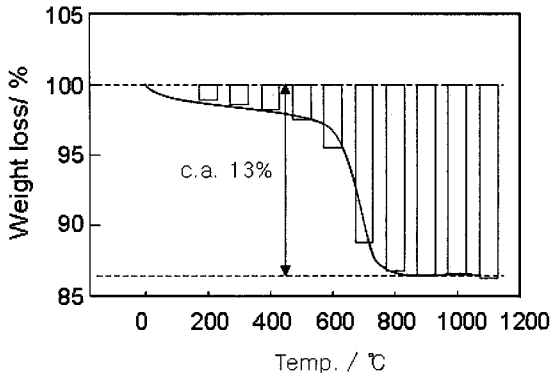


Fig. 2 Weight losses at various temperature(bar) and TGA result(curve) of serpentine powders

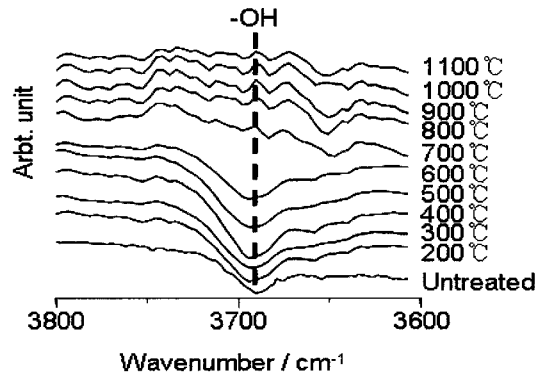


Fig. 3 FT-IR spectra of serpentine powders at various temperature

다. 분자식에 나타난 하이드록시기(-OH)는 산화물로 구성되는 다른 금속성분보다 낮은 온도에서 쉽게 기화될 수 있는 화학종이므로 사문석의 열화학처리에 수반되는 질량감소의 원인으로 설명된다. 특히 광물의 결정 속에 존재하기 때문에 표면에 흡착된 휘발성 물질보다 높은 온도에서 분리 제거 되는 것이고 사문석의 경우 500°C 이후에 나타나는 급격한 질량 감소에 해당하는 것으로 보인다. 비연속적인 온도별 열화학처리와 연속적인 열화학 반응이 진행되는 TGA 결과가 일치하는 것으로부터 사문석에 포함된 -OH 기가 제거되는 열화학 분해반응이 동일한 과정임을 알 수 있다. 한편 사문석에 포함된 적정량의 -OH 기의 제거가 필요한 경우 정밀한 온도 설정에 의한 열을 공급으로 정량적인 -OH 기 제거를 이룰 수 있는 열화학 공정이 가능한 것을 알 수 있다.

사문석의 열화학 처리에 의해 나타난 질량변화의 원인을 -OH기의 분리와 제거로 추론한 것을 확인하기 위해 열화학 처리 전후 사문석 분말의 화학적 구조 변화를 조사하기 위하여 FT-IR을 측정하였다. 미처리 분말과 200°C~1100°C에서 열화학처리 한 사문석 분말을 FT-IR을 측정결과를 Fig. 3에 나타냈다. 미처리 사문석의 FT-IR 스펙트럼에 나타나는 -OH기의 범위(3700~3400 cm⁻¹) 내 3688 cm⁻¹에서 나타나는 peak는 octahedral layer의 세 마그네슘의 hydroxyl groups에 해당하

는 stretching vibrations를 나타낸다. 3688 cm⁻¹ 밴드에서 강하게 나타나는 hydroxyl groups의 peak는 열화학처리 온도 200°C에서도 나타나고 있으며 열화학처리 온도를 600°C까지 증가시켜도 사라지지 않고 있음이 확인되었다. 이 결과는 사문석의 열화학처리 온도 600°C까지는 hydroxyl groups이 완전히 사라지지 않는 것을 설명한다. 700°C 이후의 열화학처리온도에서는 688 cm⁻¹ 밴드에서 나타나던 peak가 완전히 사라졌으므로 사문석의 결정 내에 존재하던 hydroxyl기가 제거된 것을 설명한다. 즉 600°C 열화학처리까지 사문석으로부터 hydroxyl기가 제거되는 과정 중에는 사문석의 화학적 구조가 유지되고 있으며 hydroxyl기가 사문석으로부터 완전히 제거되는 700°C 열화학처리 이후 화학적 구조의 변화가 일어나는 것을 알 수 있다. 600°C~700°C 열화학처리 과정 중 사문석에 포함된 hydroxyl groups이 외부로부터 에너지를 받고, hydroxyl groups과 금속성분 사이의 결합이 점차 약해져 결국 금속성분과의 결합이 끊어진다. 이후 분리된 hydroxyl groups들이 기화되어 급격한 질량감소를 나타내면서 제거되는 것이다. 이 결과 역시 열화학처리질량변화 실험에서 나타난 질량감소 경향과 TGA분석에서 나타난 질량감소의 원인이 사문석의 결정 내에 존재하는 hydroxyl기의 제거에 의한 것을 설명하고 있으며 앞에서 분자식으로부터 예측한 열화학 반응을 다시 설명한다.

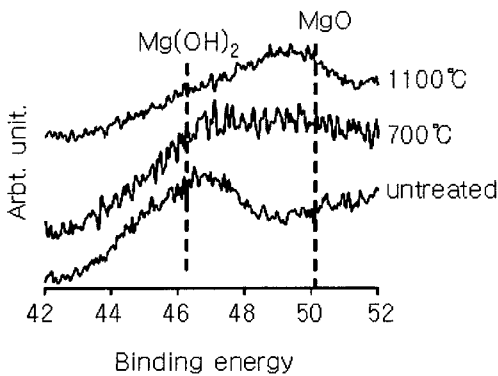


Fig. 4 XPS core spectra of serpentine powders and thermo-chemical treated serpentine powders

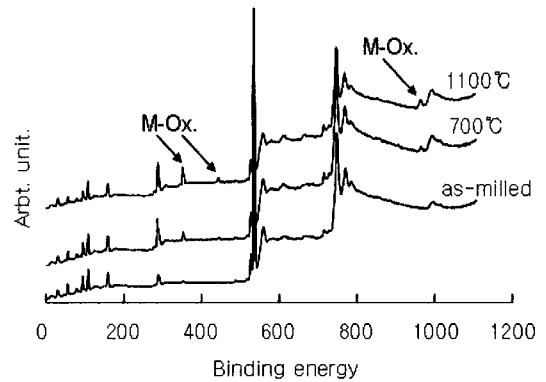


Fig. 5 XPS wide spectra of serpentine powders and thermo-chemical treated serpentine powders

사문석의 열화학처리 전후 -OH기의 제거 이후 변화를 조사하기 위해 XPS를 이용 성분금속 원소의 화학적 결합상태를 관찰하였고, 그 결과를 Fig. 4에 나타냈다. 미처리 사문석과 700°C, 1100°C에서 열화학처리 한 사문석의 스펙트럼은 열화학 처리 온도의 증가와 더불어 변화가 나타나고 있다. 미처리 사문석의 스펙트럼은 Mg(OH)₂의 피크를 뚜렷하게 나타내고 있으므로 사문석의 성분금속인 Mg이 -OH기와 결합된 상태이므로 광물의 내부에 -OH기가 안정적으로 존재하고 있음을 알 수 있다. 700°C에서 열화학처리 한 사문석의 스펙트럼에는 Mg이 산화물인지 수산화물인지 확실한 구분이 되지 않는 결과를 나타내고 있다. 상기의 FT-IR 결과에서 700°C의 스펙트럼이 -OH기가 제거된 상태를 나타내고 있으므로 이 온도에서 사문석은 휘발성분이 제거되어 금속 성분이 산소 등 다른 원소들과 결합하지 않은 상태로 존재하는 것을 나타내고 있다. 1100°C에서 열화학처리 한 결과는 다른 두 시료들과 다른 스펙트럼의 형태로 Mg이 산소와 강하게 결합된 산화물 형태로 존재하는 것을 보여주고 있다. 사문석의 열화학처리가 공기 중에서 진행되면서 공기 중 산소와 결합한 것을 나타낸다. 열화학 처리과정을 거치면서 -OH기가 제거되고 금속 성분들의 변화가 산화물로 순차적인 결합을 나타내는 결과가 확인되었다. Fig. 5에는 다른 열화학 처리온도에 따른 넓은 범위 스펙

트럼을 나타내고 있는 결과를 보여주고 있다. 이들 결과는 사문석으로부터 제거된 휘발성분이 금속 성분과 분리 후 산소들과 재결합을 이루어 금속 산화물에 해당하는 peak가 열화학처리온도 증가와 같이 성장하는 것을 보여주고 있으므로 열화학처리에 따라 -OH기의 제거 후 산소의 결합이 형성되는 것을 재확인시켜준다.

열화학 처리 전후의 사문석 분말의 표면적 변화를 조사하여 이산화탄소와 탄산염화에 대한 반응성을 고찰하였다. Table 2에 열화학처리 전후의 사문석 분말의 BET 표면적의 변화와 기공 부피와 반지름을 나타내고 있다. 열화학 처리 이후 급격한 표면적 감소가 나타나고 있으며 기공의 부피와 반지름의 감소가 관찰된 것으로 보아 열화학 처리 이후 감소한 사문석의 비표면적은 표면에 존재하는 기공 부피와 반지름 감소가 원인으로 판단된다. 열화학 처리를 통하여 사문석 표면적 감소하였으

Table 2 BET surface area and pore dimensions of as-milled and as-calcined serpentine powders

	as-milled	as-calcined
BET surface area(m/g)	12.1879	2.0684
pore volume(cc/g)	0.0229	0.0061
pore diameter(μm)	0.7542	1.1820

므로 이산화탄소와 접촉하는 사문석의 반응 면적이 감소하고 탄산염으로 변환하는 속도가 느려질 것으로 생각된다. 열화학 처리에 의한 표면적 감소는 사문석 결정 내에 포함된 -OH기가 기화와 금속성분의 상호 확산이 일어나면서 표면의 기공반지름이 증가하고 기공체적의 감소가 이루어진 것으로 생각된다.

열화학처리 전후 사문석으로부터 휘발성 성분의 제거에 따른 결정구조 변화를 조사하기 위하여 미처리 사문석 분말과 각 온도에서 열화학처리 사문석 분말의 XRD 측정결과를 Fig. 6에 나타냈다. 열화학처리 과정 중 나타나는 사문석을 구성하는 휘발성분의 기화 후 비휘발성 무기성분의 재배열이 일어나므로 사문석 결정구조 변화 역시 예상되었다. 광물 분자식을 기초로 설명되었던 열화학처리 전후의 질량변화와 FT-IR XPS를 이용한 분광학적 변화 결과와 마찬가지로 -OH기의 제거가 뚜렷하게 이루어지는 600°C를 기준으로 하는 결정구조의 변화가 뚜렷하게 나타났다. 미처리 사문석 분말의 X선회절 패턴은 전형적인 삼사정계(三斜晶系) 광물의 구조를 나타내고 있으며 이 패턴은 미처리 사문석 분말의 패턴부터 600°C까지 열화학처리 과정에서는 결정구조 변화가 없는 동일 XRD 패턴을 나타내고 있다. 열화학처리 질량변화와 TGA 측정에서 나타난 질량감소의 결과와 비교하면 600°C 이후 열화학처리 온도에서 현저한 질량 감소가 시작되므로 이 온도까지 열화학처리 한 사문석 결정구조의 변화도 나타나지 않는 것으로 예측된다. 800°C 이상의 온도에서 열화학처리 한 사문석 분말의 XRD 패턴들은 600°C의 온도까지 열화학처리 한 사문석 분말들의 XRD 패턴과는 상이한 결과들을 나타내고 있다. 사문석의 열화학처리 결과로 나타나는 XRD 패턴은 600°C 이후 대부분 휘발성분이 기화되어 사문석 구조의 변화가 시작되고 이후 성분 금속 원소들 간의 용해와 확산이 시작되는 비정질화 과정을 지나고 열역학적으로 안정한 조성이 이루어지는 충분한 상호확산 이후 재결정화가 이루어진 것이다.

미처리 사문석의 X선 회절패턴에서 관찰되지

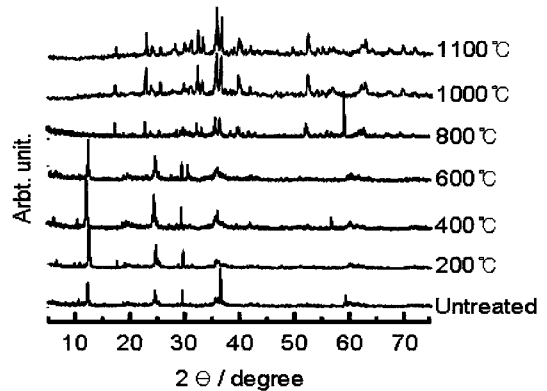


Fig. 6 XRD patterns of serpentine powders and heat treated serpentine powders

않는 많은 피크들이 1000°C에서 열화학처리 한 사문석의 X선 회절패턴에서 나타나고 있다¹⁶⁾. 이러한 결과로부터 열화학처리 과정 중에 일어나는 -OH기가 기화되는 열화학적 변성과 더불어 원광 사문석의 결정구조로부터 크게 변화된 사문석이 형성된 것으로 판단된다. 원광 사문석이 열화학처리과정에서 표면에 흡착된 수분이나 휘발성 물질의 기화 및 화합물을 구성하는 -OH기의 제거 후, 원광사문석 구성성분들이나 성분원자 간의 화학결합이 이완된다. 이후 사문석 구성성분들 간의 확산, 용해 등의 과정을 통해 처음 사문석의 성분들의 재배열이 일어난 것이다. 최종적으로 냉각과정 중에 재배열한 성분물질들은 각 상간의 분리가 일어나면서 다상(multi phase)의 복합 산화물과 유사한 변성사문석으로 변화된 것이다.

4. 결 론

열화학처리를 통한 사문석의 표면적 변화와 탄산염화에 대한 조사를 통하여 규산염 광물의 탄산염 광물화 원료로서 가능성을 평가했다.

- 1) 열화학 공정에서 사문석 분말의 13% 질량 감소는 광물 분자에 존재하는 -OH기의 기화가 원인으로 나타났으며 분광학적, 결정학적 조사를 통하여 열화학처리 전후의 사문석의 화학

적, 결정학적 변화가 확인되었다.

- 2) 휘발성분이 기화되면서 사문석 입자의 표면적의 감소가 이루어졌으며 광물 입자의 표면에 조사하는 기공 반지름, 기공체적의 감소도 동시에 나타나고 있다. 고온에서 사문석에 포함된 휘발성분의 제거 이후 고온에서 금속성분이 용해되고 구성 성분 간의 확산으로 열역학적으로 안정한 재결정 과정에 따른 것이다.

후 기

본 연구는 2006년도 단국대학교 대학연구비의 지원으로 수행되었으며, 연구비 지원에 감사합니다.

참 고 문 헌

- 1) Jepma C, Munasinghe M, "Climate Change Policy", New York, NY, Cambridge University Press; 1998, p. 331.
- 2) Bajura R. A, "The role of carbon dioxide sequestration in the long term energy future", Fifth International Greenhouse Gas Technologies Conference, Cairns, Australia, Collingwood, VIC, AU, CSIRO Publishing, 2001, p. 52-58.
- 3) R. Pierce, "Greenhouse gas mitigation technologies, an overview of the CO₂ capture, storage and future activities of the IEA Greenhouse Gas R&D programme", Energy Conversion and Management, Vol. 37, 1996, p. 665.
- 4) P. Freund and W. Ormerod, "Progress toward storage of carbon dioxide Energy Conversion and Management", Vol. 38, 1997, p. S199-4.
- 5) M. Peter, "Impacts on the marine environment from direct and indirect ocean storage of CO₂ Waste Management", Vol. 17, 1998, p. 323.
- 6) K. Cole, P. Freund and W. G. Ormerod, "Predicting future variability of dissolved inorganic carbon in the ocean Fuel and Energy", Vol. 37, 1996, p. 145.
- 7) M. Holtz, P. Nance and R. Finley, "Reduction of greenhouse gas emissions through CO₂ EOR in Texas", Environ Geosci, 2001, p. 99.
- 8) H. Koide and K. Yamazaki. "Subsurface CO₂ disposal with enhanced gas recovery and biochemical carbon recycling", Environ Geosci, 2001, p. 24.
- 9) K. Lackner, D. Butt and C. Wendt, "Progress on binding CO₂ in mineral substrates", Energy Convers Manage, Vol. 38, 1997, p. 259.
- 10) K. Lackner, C. Wendt, D. Butt, E. Joyce and D. Sharp, "Carbon dioxide disposal in carbonate minerals", Energy, Vol. 20, 1995, p. 1153.
- 11) 최원경, 조태환, 이재근, "탄산염광물화용 활석의 열처리에 따른 결정학적 분광학적 특성변화", 한국수소 및 신에너지학회 논문집, Vol. 17, No. 1, 2006, p.109-116.
- 12) 최원경, 문승현, 조태환, 이재근, "Mineral Carbonation 원료용 수활석 전처리에 대한 연구", 한국수소 및 신에너지학회 논문집, Vol. 16, No.3, 2005, p. 277-283.
- 13) R. Schulze, M. Hill, R. Field, P. Papin, R. Hanrahan and D. Byler, "Characterization of carbonated serpentine using XPS and TEM", Energy Conversion and Management, Vol. 45, 2004, p. 3169.
- 14) J. Moulder, W. Stickle, P. Sobol and K. Bomben. Handbook of X-ray photoelectron spectroscopy, Eden Prairie Minnesota, Perkin, Elmer, 1992.
- 15) 함용물, 전해수, 김용배, "사문석의 이용에 관한 연구[I], 사문석의 화학적 방법에 의한 비교 검토", 대한화학회지, Vol. 8, 1964, pp. 5-8.
- 16) 황진연, "사문석의 특성과 활용", 한국광물학회지, Vol. 15, No. 2, 2002, pp. 48-54.